

This Page Is Inserted by IFW Operations
and is not a part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

**As rescanning documents *will not* correct images,
please do not report the images to the
Image Problem Mailbox.**

THIS PAGE BLANK (USPTO)

DIALOG(R) File 351:Derwent WPI
(c) 2002 Derwent Info Ltd. All rts. reserv.

014276076 **Image available**

WPI Acc No: 2002-096778/200213

XRAM Acc No: C02-030025

XRFX Acc No: N02-071467

Light-emitting material for forming a light-emitting device which is useful in, e.g., display device, comprises an orthometalated iridium complex compound or its tautomer

Patent Assignee: FUJI PHOTO FILM CO LTD (FUJF); IGARASHI T (IGAR-I);

KIMURA K (KIMU-I); NII K (NIIK-I)

Inventor: IGARASHI T; KIMURA K; NII K

Number of Countries: 002 Number of Patents: 003

Patent Family:

Patent No	Kind	Date	Applicat No	Kind	Date	Week
<i>conv</i> US 20010019782	A1	20010906	US 2000747933	A	20001227	200213 B
JP 2001247859	A	20010914	JP 2000299495	A	20000929	200213
JP 2001345183	A	20011214	JP 2000298470	A	20000929	200214

Priority Applications (No Type Date): JP 2000299495 A 20000929; JP 99370349 A 19991227; JP 200089274 A 20000328; JP 2000298470 A 20000929

Patent Details:

Patent No	Kind	Lan	Pg	Main IPC	Filing Notes
US 20010019782	A1		37	H05B-033/12	
JP 2001247859	A		28	C09K-011/06	
JP 2001345183	A		16	H05B-033/14	

Abstract (Basic): US 20010019782 A1

NOVELTY - A light-emitting material comprises an orthometalated iridium complex compound or its tautomer.

DETAILED DESCRIPTION - A light-emitting material comprises an orthometalated iridium complex compound having a partial structure of formulas (I) to (X), (XXI), and (XXII), or its tautomer.

(CO)Ir (V);

(NC)Ir (VI);

q1, q2=0-4;

Z11, Z12, Z21, Z22=nonmetallic atom group forming 5-6 membered ring with a carbon and/or nitrogen;

Ln1=divalent group;

Y1, Y2=N or C;

b1, b2=single or double bond;

X201, X202, X203, X204=N or C-R to form a N-containing heteroaryl 6-membered ring with -C=N-;

Z201, Z301, Z401=atomic group which forms an aryl or heteroaryl ring;

Z1=atomic group which forms a heteroaryl ring;

R=H.

The sum of q1 and q2 is at least 1, and X201, X202, X203, and/or X204 is a nitrogen.

INDEPENDENT CLAIMS are also included for:

(A) a compound of formulas (XXIII) or (XXIV); and

(B) an organic light-emitting device comprising compound layers containing the light-emitting layer formed interposed between a pair of electrodes.

R13, R14, R15=H;

m1=0-4;

m2=0-6;

Z2=atomic group which forms aryl or heteroaryl ring;

Z3=atomic group which forms a nitrogen-containing heteroaryl ring;

n1=1-3.

USE - The material is used for forming a light-emitting device which is useful in display device, display, backlight, electrophotography, illuminating light source, recording light source, exposure light source, reading light source, sign, or advertising display and interior. It is also useful for medical use or as fluorescent brightening agent, photographic material,

ultraviolet-absorbing material, laser dye, color filter dye, or color conversion filter.

ADVANTAGE - The material is capable of converting electric energy to light, and produces light-emitting device having good light-emitting properties.

pp; 37 DwgNo 0/0

Technology Focus:

TECHNOLOGY FOCUS - IMAGING AND COMMUNICATION - Preferred Material: The light-emitting material is formed by a coating process. The device has an external quantum efficiency of at least 5%, and lambda_{max} of light emitting of at least 590 nm.

ORGANIC CHEMISTRY - Preferred Component: The quinoline derivative ligand is formed by at least 4 rings.

Title Terms: LIGHT; EMIT; MATERIAL; FORMING; LIGHT; EMIT; DEVICE; USEFUL; DISPLAY; DEVICE; COMPRISE; IRIIDIUM; COMPLEX; COMPOUND; TAUTOMER

Derwent Class: E12; G08; L03; U11; X26

International Patent Class (Main): C09K-011/06; H05B-033/12; H05B-033/14

International Patent Class (Additional): C07D-213/02; C07D-213/16;

C07D-213/20; C07D-213/22; C07D-213/26; C07D-213/28; C07D-213/68;

C07D-213/84; C07D-215/04; C07D-217/02; C07D-221/02; C07D-221/10;

C07D-231/12; C07D-237/12; C07D-241/12; C07D-241/16; C07D-247/00;

C07D-263/56; C07D-401/04; C07D-409/04; C07D-471/04; C07F-015/00

File Segment: CPI; EPI

Manual Codes (CPI/A-N): E05-N; G04-A; G06-F06; G06-F07; G06-G18; L03-C04A; L03-D01D

Manual Codes (EPI/S-X): U11-A15; X26-J

Chemical Fragment Codes (M3):

- *01* A677 A910 F012 F013 F019 F211 F431 M1 M116 M280 M320 M411 M510 M522 M530 M540 M781 M904 M905 Q344 Q454 RA56XU-K RA56XU-U
- *02* A677 A910 D021 E160 M280 M320 M411 M511 M520 M530 M540 M781 M904 M905 Q344 Q454 RA56XV-K RA56XV-U 03524
- *03* A677 A910 D012 D621 G011 G100 M1 M113 M280 M320 M411 M511 M520 M531 M540 M781 M904 M905 Q344 Q454 RA56XW-K RA56XW-U 03524
- *04* A677 A910 F012 F013 F014 F015 F016 F431 G011 G014 G015 G017 G018 G100 M1 M113 M280 M320 M411 M510 M521 M531 M540 M781 M904 M905 Q344 Q454 0047-21301-K 0047-21301-U 03524
- *05* A677 A910 F010 F012 F013 F014 F015 F016 F020 F431 F530 F541 F551 F580 F590 G001 G002 G011 G012 G013 G020 G021 G022 G029 G040 G100 G221 M1 M113 M115 M116 M280 M320 M411 M510 M521 M522 M530 M531 M540 M781 M904 M905 Q344 Q454 0047-21302-K 0047-21302-U 03524 00160 00177 00178 00210 00211 00212 41247
- *06* A677 A910 D010 D020 D040 F010 F020 G001 G002 G011 G012 G013 G020 G021 G022 G029 G040 G100 G221 M1 M113 M115 M116 M280 M320 M411 M511 M520 M521 M530 M531 M540 M781 M904 M905 Q344 Q454 0047-21303-K 0047-21303-U 03524 00160 00177 00178 00210 00211 00212 41247
- *07* A677 A910 D012 D621 F010 F020 G001 G002 G011 G012 G013 G020 G021 G022 G029 G040 G100 G221 M1 M113 M115 M116 M280 M320 M411 M511 M520 M521 M530 M531 M540 M781 M904 M905 Q344 Q454 0047-21304-K 0047-21304-U 03524 00160 00177 00178 00210 00211 00212 41247
- *08* A677 A910 D010 D019 D020 D029 D040 D049 F010 F019 F020 F029 M1 M126 M132 M280 M320 M411 M510 M511 M512 M520 M521 M522 M530 M540 M781 M904 M905 Q344 Q454 0047-21305-K 0047-21305-U 03524 00160 00177 00178 00210 00211 00212 41247
- *09* A677 A923 A960 D012 D013 D014 D019 D021 D022 D023 D024 D025 D029 D621 D699 G011 G014 G015 G017 G018 G019 G100 M113 M119 M121 M144 M280 M320 M411 M510 M512 M520 M530 M532 M540 M620 M630 M650 M781 M904 M905 Q344 Q454 0047-21306-K 0047-21306-U 03524 00160 00177 00178 00210 00211 00212 41247
- *10* A677 A923 D012 D013 D014 D019 D021 D022 D023 D024 D025 D029 D621 D699 F010 F019 F020 F029 G011 G014 G015 G017 G018 G019 G100 M1 M113 M116 M119 M121 M123 M126 M129 M144 M280 M320 M411 M511 M512 M513 M520 M522 M523 M531 M532 M533 M540 M781 M904 M905 Q344 Q454 0047-21307-K 0047-21307-U 03524 00160 00177 00178 00210 00211 00212 41247

Ring Index Numbers: ; 03524; 00160; 00177; 00178; 00210; 00211; 00212; 41247

Specific Compound Numbers: RA56XU-K; RA56XU-U; RA56XV-K; RA56XV-U; RA56XW-K

; RA56XW-U

Generic Compound Numbers: 0047-21301-K; 0047-21301-U; 0047-21302-K;
0047-21302-U; 0047-21303-K; 0047-21303-U; 0047-21304-K; 0047-21304-U;
0047-21305-K; 0047-21305-U; 0047-21306-K; 0047-21306-U; 0047-21307-K;
0047-21307-U

Key Word Indexing Terms:

01 450844-0-0-0-CL, USE 450845-0-0-0-CL, USE 450846-0-0-0-CL, USE
0047-21301-CL, USE 0047-21302-CL, USE 0047-21303-CL, USE
0047-21304-CL, USE 0047-21305-CL, USE 0047-21306-CL, USE
0047-21307-CL, USE

THIS PAGE BLANK (USPTO)

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2001-345183

(P2001-345183A)

(43) 公開日 平成13年12月14日 (2001. 12. 14)

(51) Int.Cl. ¹	識別記号	F I	テ-マ-ト* (参考)
H 0 5 B 33/14		H 0 5 B 33/14	B 3 K 0 0 7
C 0 7 D 215/04		C 0 7 D 215/04	4 C 0 5 6
241/12		241/12	4 C 0 6 3
263/56		263/56	4 H 0 5 0
401/04		401/04	
審査請求 未請求 請求項の数 8 . O L (全 16 頁) 最終頁に続く			

(21) 出願番号 特願2000-298470 (P2000-298470)

(22) 出願日 平成12年9月29日 (2000. 9. 29)

(31) 優先権主張番号 特願2000-89274 (P2000-89274)

(32) 優先日 平成12年3月28日 (2000. 3. 28)

(33) 優先権主張国 日本 (J P)

(71) 出願人 000005201

富士写真フイルム株式会社

神奈川県南足柄市中沼210番地

(72) 発明者 新居 一巳

神奈川県南足柄市中沼210番地 富士写真
フイルム株式会社内

(72) 発明者 五十嵐 達也

神奈川県南足柄市中沼210番地 富士写真
フイルム株式会社内

(74) 代理人 100105647

弁理士 小栗 昌平 (外4名)

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 高効率赤色発光素子、イリジウム錯体から成る発光素子材料及び新規イリジウム錯体

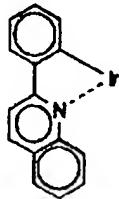
(57) 【要約】

【課題】 発色特性が良好な赤色発光素子およびそれを可能にする発光素子材料を提供する。

【解決手段】 外部量子効率5%以上、発光の λ_{\max} = 590 nm以上の特性を発揮する、一般式(1)で表される部分構造を有する化合物から成る発光素子材料を用いる。

【化1】

一般式 (1)



1

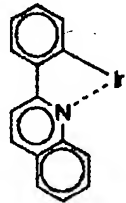
【特許請求の範囲】

【請求項1】 外部量子効率5%以上、発光の λ_{\max} = 590nm以上の特性を有する有機発光素子。

【請求項2】 一般式(1)で表される部分構造を有する化合物から成る発光素子材料。

【化1】

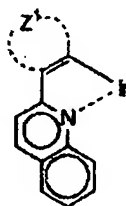
一般式(1)



【請求項3】 一般式(2)で表される部分構造を有する化合物から成る発光素子材料。

【化2】

一般式(2)

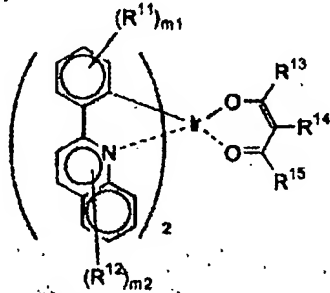


式中、Z¹はヘテロアリール環を形成する原子団を表す。

【請求項4】 一般式(3)で表される化合物。

【化3】

一般式(3)

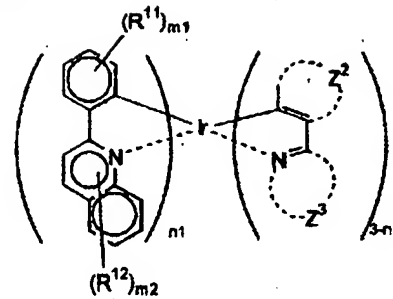


式中、R¹¹、R¹²は置換基を表し、R¹³、R¹⁴、R¹⁵は水素原子または置換基を表す。m¹は0~4の整数を表し、m²は0~6の整数を表す。

【請求項5】 一般式(4)で表される化合物およびその互変異性体。

【化4】

一般式(4)



10

式中、R¹¹、R¹²は置換基を表す。m¹は0~4の整数を表し、m²は0~6の整数を表す。Z²はアリール環もしくはヘテロアリール環を形成する原子団を表し、Z³は含窒素ヘテロアリール環を形成する原子団を表す。n¹は1~3の整数を表す。

【請求項6】 一般式(1)、(2)、(3)または(4)記載の化合物においてキノリン誘導体配位子が少なくとも4つ以上の環から形成されることを特徴とする発光材料。

20 【請求項7】 一对の電極間に発光層もしくは発光層を含む複数の有機化合物層を形成した発光素子において、少なくとも一層に請求項2ないし請求項6に記載の化合物を少なくとも一種含有する層であることを特徴とする発光素子。

【請求項8】 請求項2ないし請求項6に記載の化合物を含有する層が塗布プロセスで成膜されていることを特徴とする請求項7に記載の発光素子。

【発明の詳細な説明】

【0001】

30 【発明の属する技術分野】本発明は、電気エネルギーを光に変換して発光できる発光素子用材料および発光素子に関し、表示素子、ディスプレイ、バックライト、電子写真、照明光源、記録光源、露光光源、読み取り光源、標識、看板、インテリア等の分野に好適に使用できる発光素子に関する。また、各種分野での応用が期待される新規発光材料に関する。

【0002】

【従来の技術】今日、種々の表示素子に関する研究開発が活発であり、中でも有機電界発光(EL)素子は、低電圧で高輝度の発光を得ることができるため、有望な表示素子として注目されている。例えば、有機化合物の蒸着により有機薄膜を形成する発光素子が知られている(アプライド フィジックス レターズ、51巻、913頁、1987年)。この文献に記載された発光素子はトリス(8-ヒドロキシキノリナト)アルミニウム錯体(A1q)を電子輸送材料として用い、正孔輸送材料(アミン化合物)と積層させることにより、従来の単層型素子に比べて発光特性を大幅に向上させている。

【0003】近年、有機EL素子をカラーディスプレイへと適用することが活発に検討されているが、高性能

ラーディスプレイを開発する為には、青・緑・赤、それぞれの発光素子の特性を向上する必要がある。

【0004】発光素子特性向上の手段として、オルトメタル化イリジウム錯体 (Ir(ppy)₃: Tris-Ortho-Metalated Complex of Iridium (III) with 2-Phenylpyridine) からの発光を利用した緑色発光素子が報告されている (Applied Physics Letters 75, 4 (1999)...)。本素子は外部量子収率8%を達しており、従来素子の限界といわれていた外部量子収率5%を凌駕しているが、緑色発光に限定されている為、ディスプレイとしての適用範囲が狭く、高効率で他色に発光素子の開発が求められていた。

【0005】赤色発光素子に着目してみると、DCM (4-(Dicyanomethylene)-2-methyl-6-(4-dimethylaminostyryl)-4H-pyran) 及びその類縁体を用いる発光素子などが多数報告されているが、外部量子効率5%を超える素子は未だ報告されていない。赤色発光で従来の限界とされている外部量子効率5%を凌駕すれば、高効率有機ELデバイスのカラー化が大きく前進できることになり、開発が囑望されているのである。また、近年、フィルター用染料、色変換フィルター、写真感光材料染料、増感色素、バルブ染色用染料、レーザー色素、医療診断用蛍光薬剤、有機発光素子用材料等に蛍光を有する物質が種々用いられ、その需要が高まっており、新たな発光材料が望まれていた。

【0006】

【発明が解決しようとする課題】本発明の目的は、発光特性が良好な赤色発光素子およびそれを可能にする発光素子用材料の提供、および、各種分野で利用可能な新規発光材料の提供にある。

【0007】

【課題を解決するための手段】この課題は下記手段によって達成された。

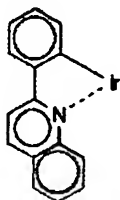
① 外部量子効率5%以上、発光の λ_{max} =590nm以上の特性を有する有機発光素子。

② 一般式(1)で表される部分構造を有する化合物から成る発光素子材料。

【0008】

【化5】

一般式(1)

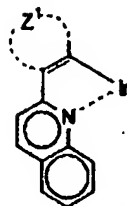


【0009】③ 一般式(2)で表される部分構造を有する化合物から成る発光素子材料。

【0010】

【化6】

一般式(2)



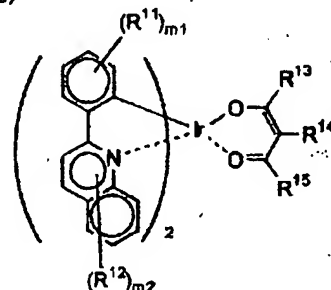
10 【0011】式中、Z¹はヘテロアリアル環を形成する原子団を表す。

④ 一般式(3)で表される化合物。

【0012】

【化7】

一般式(3)



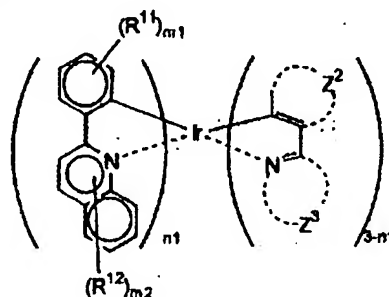
【0013】式中、R¹¹、R¹²は置換基を表し、R¹³、R¹⁴、R¹⁵は水素原子または置換基を表す。m¹は0~4の整数を表し、m²は0~6の整数を表す。

⑤ 一般式(4)で表される化合物およびその互変異性体。

【0014】

【化8】

一般式(4)



【0015】式中、R¹¹、R¹²は置換基を表す。m¹は0~4の整数を表し、m²は0~6の整数を表す。Z²はアリアル環もしくはヘテロアリアル環を形成する原子団を表し、Z³は含窒素ヘテロアリアル環を形成する原子団を表す。n¹は1~3の整数を表す。

⑥ 一般式(1)、(2)、(3)または(4)記載の化合物においてキノリン誘導体配位子が少なくとも4つ以上の環から形成されることを特徴とする発光材料。

50 ⑦ 一対の電極間に発光層もしくは発光層を含む複数の

有機化合物薄膜を形成した発光素子において、少なくとも一層に②ないし⑤に記載の化合物を少なくとも一種含有する層であることを特徴とする発光素子。

⑤ ②ないし⑤に記載の化合物を含有する層が塗布プロセスで成膜されていることを特徴とする②に記載の発光素子。

【0016】

【発明の実施の形態】以下、本発明について詳細に説明する。本発明の発光素子は外部量子効率 5%以上、発光の λ_{\max} =590nm 以上の特性を有する有機発光素子である。有機発光素子としては特に限定しないが、有機EL (エレクトロルミネッセンス) 素子が好ましい。

【0017】本発明の発光素子の外部量子効率は好ましくは7%以上、より好ましくは9%以上、さらに好ましくは11%以上、特に好ましくは13%以上である。

【0018】本発明の発光素子は赤色色純度の観点から、発光の λ_{\max} は好ましくは593nm以上、より好ましくは596nm以上であり、さらに好ましくは599nm以上である。

【0019】本発明の発光素子は遷移金属錯体 (好ましくはオルトメタル化錯体) を含有した素子が好ましく、イリジウム錯体、白金錯体を含有した素子がより好ましく、オルトメタル化イリジウム錯体を含有した素子がさらに好ましく、後述の一般式 (1) または一般式 (2) で表される部分構造を有する化合物を含有する素子が特に好ましい。

【0020】オルトメタル化錯体 (orthometalated Ir Complexes) とは、例えば「有機金属化学—基礎と応用—」p150, 232 裳華房社 山本明夫著 1982 年発行、「Photochemistry and Photophysics of Coordination Compounds」p71-p77, p135-p146 Springer-Verlag社 H.Yersin著 1987年発行 等に記載されている化合物群の総称である。

【0021】本発明の発光素子は陰極と発光層の間にイオン化ポテンシャル5.9eV以上 (より好ましくは6.0eV以上) の化合物を含有する層を用いるのが好ましく、イオン化ポテンシャル5.9eV以上の電子輸送層を用いるのがより好ましい。

【0022】本発明の発光素子は赤色色純度の観点から、発光のCIE色度値のx値は、好ましくは0.50以上、より好ましくは0.53以上、さらに好ましくは0.57以上、さらに好ましくは0.60以上である。

【0023】本発明の発光素子は赤色色純度の観点から、発光のCIE色度値のy値は、好ましくは0.50以下、より好ましくは0.45以下、さらに好ましくは0.40以下、特に好ましくは0.39以下である。

【0024】本発明の発光素子は赤色色純度の観点から、発光スペクトルの半値幅は100nm以下が好ましく、90nm以下がより好ましく、80nm以下がさら

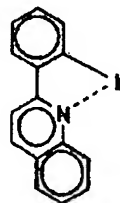
に好ましく、70nm以下が特に好ましい。

【0025】次に、一般式 (1) または一般式 (2) で表される部分構造を有する化合物に関して説明する。

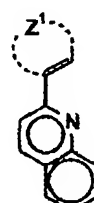
【0026】

【化9】

一般式 (1)



一般式 (2)



【0027】一般式 (2) 中、Z¹はヘテロアリール環を形成する原子団を表す。Z¹で形成されるヘテロアリール環は好ましくは炭素原子、窒素原子、酸素原子、硫黄原子からなるヘテロアリール環を表し、さらに好ましくは5ないし6員のヘテロアリール環を表し、さらに縮環を形成しても良く、好ましくは炭素数2~30、より好ましくは炭素数2~20、特に好ましくは炭素数2~10であり、例えばピリジン、ピリミジン、ピラジン、ピリダジン、キノリン、イソキノリン、キノキサリン、フトラジン、キナゾリン、ナフトリジン、シンノリン、ペリミジン、フェナントロリン、ピロール、イミダゾール、ピラゾール、オキサゾール、オキサジアゾール、トリアゾール、チアゾール、チアジアゾール、ベンズイミダゾール、ベンズオキサゾール、ベンズチアゾール、フェナントリジン、チオフェン、フランなどが挙げられる。上記②または③記載の発光素子材料は一般式 (1) または一般式 (2) で表される部分構造を有し、配位子の表すキノリン環、フェニル環、ヘテロアリール環は縮環していても良く、置換基を有しても良い。置換基としては例えば一般式 (3) のR¹¹、R¹²で説明するものが挙げられる。

【0028】一般式 (1) または一般式 (2) で表される部分構造を有する化合物のイリジウムの価数は特に限定しないが、3価が好ましい。化合物中にイリジウム原子を一つ有しても良いし、また、2つ以上有するいわゆる複核錯体であっても良いが、イリジウム原子を一つ有する化合物が好ましい。他の金属原子を同時に含有していても良いが、イリジウム錯体のみを有する化合物が好ましい。

【0029】一般式 (1) または一般式 (2) で表される部分構造を有する化合物は種々の配位子を有することが出来る。配位子としては種々の公知の配位子が有るが、例えば、「Photochemistry and Photophysics of Coordination Compounds」Springer-Verlag社 H.Yersin著 1987年発行、「有機金属化学—基礎と応用—」裳華房社 山本明夫著 1982年発行 等に記載の配位子が挙げられ、好ましくは、ハロゲン配位子 (好ましくは塩素配位子)、含窒素ヘテロ環配位子 (より好ましく

はアリール基置換含窒素ヘテロ環誘導体（アリール基の置換位置は含窒素ヘテロ環窒素原子の隣接炭素上であり、アリール基としては例えばフェニル基、ナフチル基、アントリル基、フェナジトリル基、ビレニル基などが挙げられ、さらに炭素環、ヘテロ環と縮環を形成しても良い。含窒素ヘテロ環としては、例えば、ピリジン、ピリミジン、ヒラジン、ヒリダジン、キノリン、イソキノリン、キノキサリン、フトラジン、キナゾリン、ナフトリジン、シンノリン、ペリミジン、フェナントロリン、ピロール、イミダゾール、ピラゾール、オキサゾール、オキサジアゾール、トリアゾール、チアジアゾール、ベンズイミダゾール、ベンズオキサゾール、ベンズチアゾール、フェナントリジンなどが挙げられる）、ヘテロアリール基置換含窒素ヘテロ環誘導体（ヘテロアリール基の置換位置は含窒素ヘテロ環窒素原子の隣接炭素上であり、ヘテロアリール基としては例えば前記の含窒素ヘテロ環誘導体を含む基、チエニル基、フリル基などが挙げられる）が挙げられ、例えばフェニルピリジン、ベンゾキノリン、キノリノール、ビピリジル、フェナントロリンなど）、ジケトン配位子、カルボン酸配位子、PF₆配位子であり、より好ましくはアリール基置換含窒素ヘテロ環誘導体、ジケトン配位子である。

【0030】本発明の化合物の配位子の種類は1種類でも良いし、複数の種類があっても良い。錯体中の配位子の数は好ましくは1、2種類であり、特に好ましくは2種類である。

【0031】本発明の化合物は中性錯体でも良いし、対塩（例えば塩素イオン、PF₆イオン、ClO₄イオン、四級塩（テトラブチルアンモニウムなど））を有するイオン性錯体でも良い。中性錯体が好ましい。

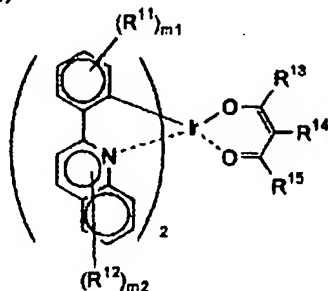
【0032】本発明の化合物の炭素数は、好ましくは15~100、より好ましくは20~70、さらに好ましくは30~60である。

【0033】本発明の化合物の好ましい形態は、一般式（3）または一般式（4）で表される化合物である。次に、一般式（3）について説明する。

【0034】

【化10】

一般式（3）



【0035】R¹¹、R¹²は置換基を表す。R¹¹どうし、R¹²どうし、R¹¹、R¹²が結合して環構造を形成しても

良い。置換基としては、例えば、例えば、アルキル基（好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~20、特に好ましくは炭素数1~10であり、例えばメチル、エチル、i s o -プロピル、tert -ブチル、n -オクチル、n -デシル、n -ヘキサデシル、シクロプロピル、シクロペンチル、シクロヘキシルなどが挙げられる。）、アルケニル基（好ましくは炭素数2~30、より好ましくは炭素数2~20、特に好ましくは炭素数2~10であり、例えばビニル、アリル、2-ブテニル、3-ペンテニルなどが挙げられる。）、アルキニル基（好ましくは炭素数2~30、より好ましくは炭素数2~20、特に好ましくは炭素数2~10であり、例えばプロパルギル、3-ペンチニルなどが挙げられる。）、アリール基（好ましくは炭素数6~30、より好ましくは炭素数6~20、特に好ましくは炭素数6~12であり、例えばフェニル、p -メチルフェニル、ナフチル、アントラニルなどが挙げられる。）、アミノ基（好ましくは炭素数0~30、より好ましくは炭素数0~20、特に好ましくは炭素数0~10であり、例えばアミノ、メチルアミノ、ジメチルアミノ、ジエチルアミノ、ジベンジルアミノ、ジフェニルアミノ、ジトリルアミノなどが挙げられる。）、アルコキシ基（好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~20、特に好ましくは炭素数1~10であり、例えばメトキシ、エトキシ、プロトキシ、2-エチルヘキシロキシなどが挙げられる。）、アリールオキシ基（好ましくは炭素数6~30、より好ましくは炭素数6~20、特に好ましくは炭素数6~12であり、例えばフェニルオキシ、1-ナフチルオキシ、2-ナフチルオキシなどが挙げられる。）、ヘテロアリールオキシ基（好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~20、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばピリジルオキシ、ピラジリルオキシ、ピリミジルオキシ、キノリルオキシなどが挙げられる。）、アシル基（好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~20、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばアセチル、ベンゾイル、ホルミル、ヒバロイルなどが挙げられる。）、アルコキシカルボニル基（好ましくは炭素数2~30、より好ましくは炭素数2~20、特に好ましくは炭素数2~12であり、例えばメトキシカルボニル、エトキシカルボニルなどが挙げられる。）、アリールオキシカルボニル基（好ましくは炭素数7~30、より好ましくは炭素数7~20、特に好ましくは炭素数7~12であり、例えばフェニルオキシカルボニルなどが挙げられる。）、アシルオキシ基（好ましくは炭素数2~30、より好ましくは炭素数2~20、特に好ましくは炭素数2~10であり、例えばアセトキシ、ベンゾイルオキシなどが挙げられる。）、アシルアミノ基（好ましくは炭素数2~30、より好ましくは炭素数2~20、特に好ましくは炭素数2~10であり、例えばアセチルアミノ、ベンゾイ

ルアミノなどが挙げられる。)、アルコキシカルボニルアミノ基(好ましくは炭素数2~30、より好ましくは炭素数2~20、特に好ましくは炭素数2~12であり、例えばメトキシカルボニルアミノなどが挙げられる。)、アリールオキシカルボニルアミノ基(好ましくは炭素数7~30、より好ましくは炭素数7~20、特に好ましくは炭素数7~12であり、例えばフェニルオキシカルボニルアミノなどが挙げられる。)、スルホニルアミノ基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~20、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばメタンスルホニルアミノ、ベンゼンスルホニルアミノなどが挙げられる。)、スルファモイル基(好ましくは炭素数0~30、より好ましくは炭素数0~20、特に好ましくは炭素数0~12であり、例えばスルファモイル、メチルスルファモイル、ジメチルスルファモイル、フェニルスルファモイルなどが挙げられる。)、カルバモイル基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~20、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばカルバモイル、メチルカルバモイル、ジエチルカルバモイル、フェニルカルバモイルなどが挙げられる。)、アルキルチオ基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~20、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばメチルチオ、エチルチオなどが挙げられる。)、アリールチオ基(好ましくは炭素数6~30、より好ましくは炭素数6~20、特に好ましくは炭素数6~12であり、例えばフェニルチオなどが挙げられる。)、ヘテロアリールチオ基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~20、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばビリジルチオ、2-ベンズイミゾリルチオ、2-ベンズオキサゾリルチオ、2-ベンズチアゾリルチオなどが挙げられる。)、スルホニル基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~20、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばメシル、トシルなどが挙げられる。)、スルフィニル基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~20、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばメタンスルフィニル、ベンゼンスルフィニルなどが挙げられる。)、ウレイド基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~20、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばウレイド、メチルウレイド、フェニルウレイドなどが挙げられる。)、リン酸アミド基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~20、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばジエチルリン酸アミド、フェニルリン酸アミドなどが挙げられる。)、ヒドロキシ基、メルカプト基、ハロゲン原子(例えばフッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子)、シアノ基、スルホ基、カルボキシル基、ニトロ基、ヒドロキサム酸基、スルフィノ基、ヒドラジノ基、イミノ基、ヘテロ環基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~12)

2であり、ヘテロ原子としては、例えば窒素原子、酸素原子、硫黄原子、具体的には例えばイミダゾリル、ビリジル、キノリル、フリル、チエニル、ピペリジル、モルホリノ、ベンズオキサゾリル、ベンズイミダゾリル、ベンズチアゾリル、カルバゾリルなどが挙げられる。)、シリル基(好ましくは炭素数3~40、より好ましくは炭素数3~30、特に好ましくは炭素数3~24であり、例えばトリメチルシリル、トリフェニルシリルなどが挙げられる。))などが挙げられる。これらの置換基は更に置換されてもよく、また、置換基同士が結合して環構造を形成しても良い。

【0036】 R^{11} 、 R^{12} は好ましくはアルキル基、アリール基、ヘテロアリール基、アルコキシ基、ハロゲン原子、シアノ基、結合して(R^{11} どうし、 R^{12} どうし、 R^{11} 、 R^{12} 間で)環構造を形成したものであり、より好ましくは、アルキル基、アリール基、結合して芳香環を形成する基、さらに好ましくはアルキル基、結合して芳香族炭素環を形成する基である。

【0037】 R^{13} 、 R^{14} 、 R^{15} は水素原子または置換基を表す。 R^{13} 、 R^{15} で表される置換基としてはアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アリール基、ヘテロ環基、アルコキシ基が挙げられ、 R^{11} 、 R^{12} で説明したアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アリール基、ヘテロ環基、アルコキシ基と同様である。 R^{13} 、 R^{15} はアルキル基、アリール基、ヘテロアリール基が好ましく、アルキル基がより好ましい。

【0038】 R^{14} で表される置換基としては、例えば、アルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アリール基、ヘテロアリール基、ヘテロ環基、シアノ基が挙げられ、 R^{11} 、 R^{12} で説明したアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アリール基、ヘテロアリール基、ヘテロ環基と同様である。 R^{14} は水素原子、アルキル基が好ましく、水素原子がより好ましい。

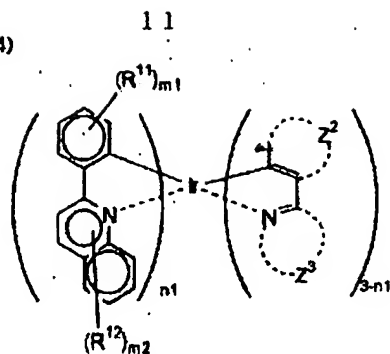
【0039】 m^1 は0~4の整数を表し、 m^2 は0~6の整数を表す。 m^1 、 m^2 が複数の時、複数の R^{11} 、 R^{12} はそれぞれ同一であっても異なっても良い。 m^1 は0~2が好ましい。 m^2 は0~4が好ましく、0~2がより好ましい。

【0040】次に、一般式(4)について説明する。

【0041】

【化11】

一般式(4)



【0042】式中、R¹¹、R¹²、m¹、m²は一般式(3)と同義である。Z²はアリール環、ヘテロアリール環を形成する原子団を表す。Z²が形成するアリール環は好ましくは炭素数6~30、より好ましくは炭素数6~20、特に好ましくは炭素数6~12であり、例えばフェニル基、ナフチル基、アントリル基、フェナントリル基、ピレニル基などが挙げられ、さらに炭素環、ヘテロ環と縮環を形成しても良い。Z²が表すヘテロアリール環は好ましくは炭素原子、窒素原子、酸素原子、硫黄原子からなるヘテロアリール環を表し、さらに好ましくは5ないし6員のヘテロアリール環を表し、さらに縮環を形成しても良く、好ましくは炭素数2~30、より好ましくは炭素数2~20、特に好ましくは炭素数2~10であり、例えばピリジン、ピリミジン、ピラジン、ピリダジン、キノリン、イソキノリン、キノキサリン、フタラジン、キナゾリン、ナフトリジン、シンノリン、ペリミジン、フェナントロリン、ピロール、イミダゾール、ピラゾール、オキサゾール、オキサジアゾール、トリアゾール、チアゾール、チアジアゾール、ベンズイミダゾール、ベンズオキサゾール、ベンズチアゾール、フェナントリジン、チオフェン、フランなどが挙げられる。Z²が形成する環はアリール環が好ましい。

【0043】Z³は-C=N-とともに含窒素ヘテロ環を形成する原子団を表し、好ましくは炭素原子、窒素原子、酸素原子、硫黄原子からなる含窒素ヘテロアリール環を表し、さらに好ましくは5ないし6員の含窒素ヘテロアリール環を表し、さらに縮環を形成しても良く、好ましくは炭素数2~30、より好ましくは炭素数2~20、特に好ましくは炭素数2~10であり、例えばピリジン、ピリミジン、ピラジン、ピリダジン、キノリン、イソキノリン、キノキサリン、フタラジン、キナゾリン、ナフトリジン、シンノリン、ペリミジン、フェナントロリン、ピロール、イミダゾール、ピラゾール、オキサゾール、オキサジアゾール、トリアゾール、チアゾール、チアジアゾール、ベンズイミダゾール、ベンズオキサゾール、ベンズチアゾール、フェナントリジンなどが挙げられる。

【0044】一般式(1)、(2)、(3)または

12

(4)記載の化合物におけるキノリン誘導体配位子は、さらに好ましくは少なくとも4つ以上の環から形成される。

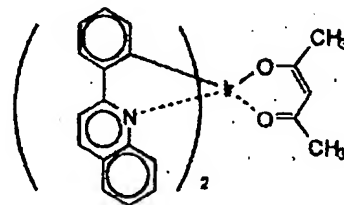
【0045】本発明の化合物は一般式(1)または一般式(2)の繰り返し単位をひとつ有する、いわゆる低分子化合物であっても良く、また、一般式(1)または一般式(2)の繰り返し単位を複数個有するいわゆる、オリゴマー化合物、ポリマー化合物(質量平均分子量(ポリスチレン換算)は好ましくは1000~5000000、より好ましくは2000~1000000、さらに好ましくは3000~1000000である。)であっても良い。本発明の化合物は低分子化合物が好ましい。

【0046】次に本発明の化合物例を示すが、本発明はこれに限定されない。

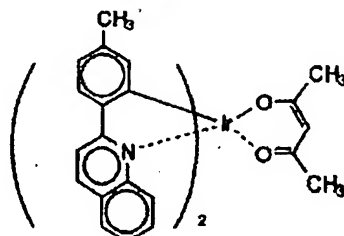
【0047】

【化12】

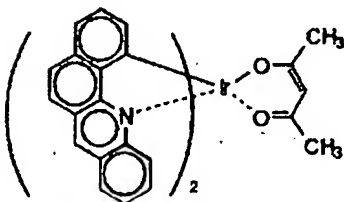
(1-1)



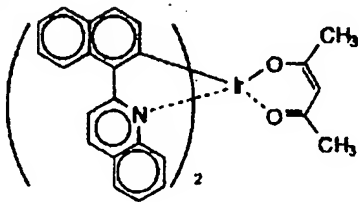
(1-2)



(1-3)



(1-4)



【0048】

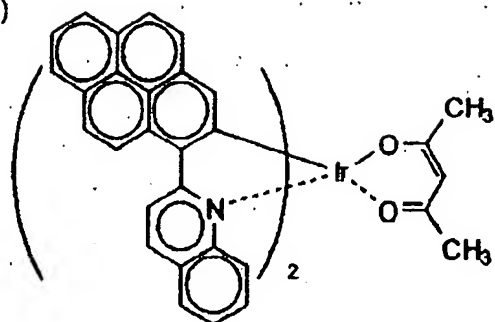
【化13】

(8)

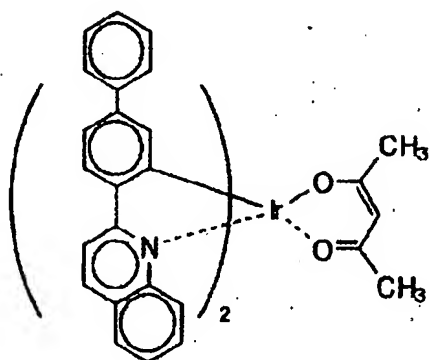
特開2001-345183

14

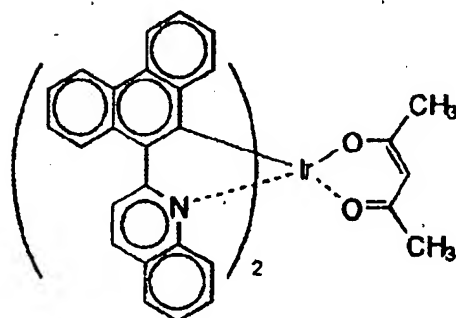
13
(1-5)



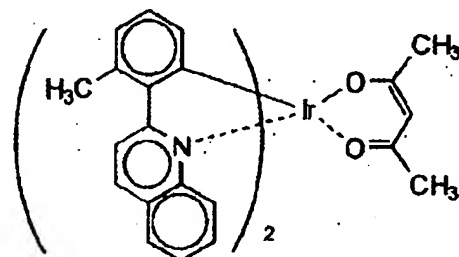
(1-6)



(1-7)



(1-8)

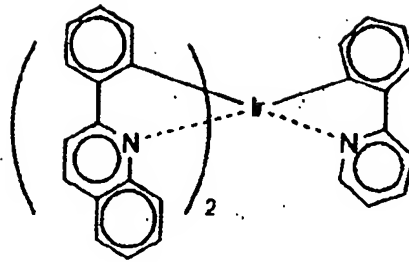


【0049】

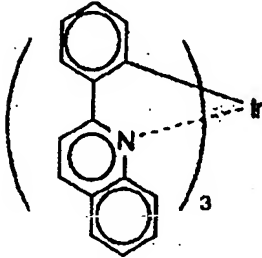
* 40 * 【化14】

(9)

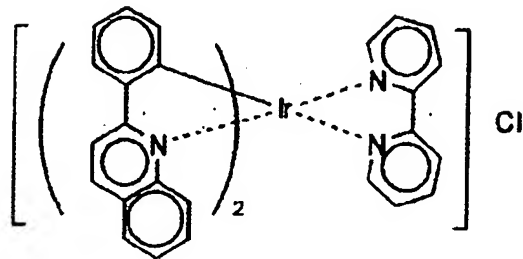
15
(1-9)



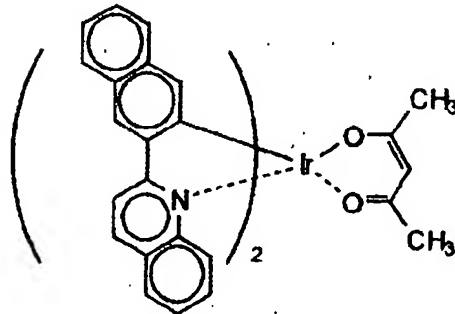
(1-10)



(1-11)



(1-12)



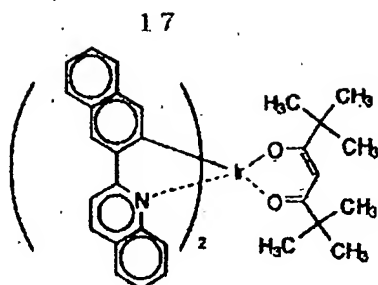
【0050】

【化15】

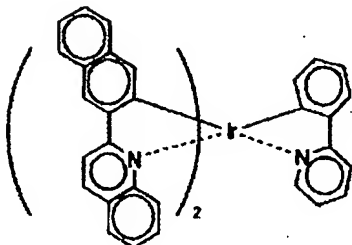
(10)

特開2001-345183

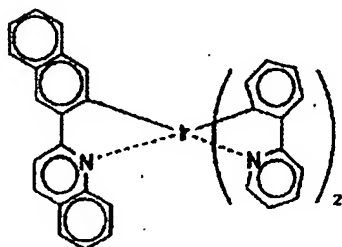
(I-13)



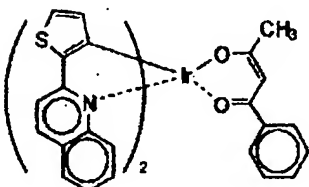
(I-14)



(I-15)



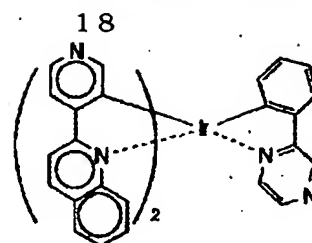
(I-16)



【0051】

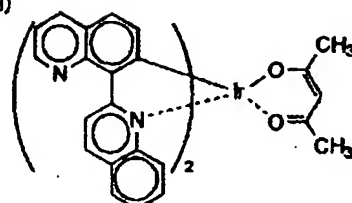
【化16】

(I-17)



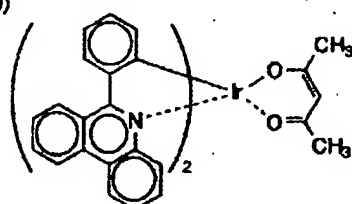
(I-18)

10

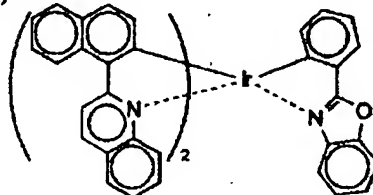


(I-19)

20



(I-20)



【0052】本発明の化合物は種々の手法で合成することができる。例えば、種々の配位子、またはその解離体とイリジウム化合物を溶媒（例えば、ハロゲン系溶媒、アルコール系溶媒、エーテル系溶媒、水などが挙げられる）の存在下、もしくは、溶媒非存在下、塩基の存在下（無機、有機の種々の塩基、例えば、ナトリウムメトキサイド、セブトキシカリウム、トリエチルアミン、炭酸カリウムなどが挙げられる）、もしくは、塩基非存在下、室温以下、もしくは加熱し（通常の加熱以外にもマイクロウェーブで加熱する手法も有効である）得ることができる。出発原料としては、例えば、イリジウムクロライド（III）、トリスアセチルアセトナトイリジウム（III）、ポタシウムヘキサクロロイリデート（III）、ポタシウムヘキサクロロイリデート（IV）及びその類縁体を用いることが出来る。

【0053】本発明化合物の合成例の一部を以下に示す。

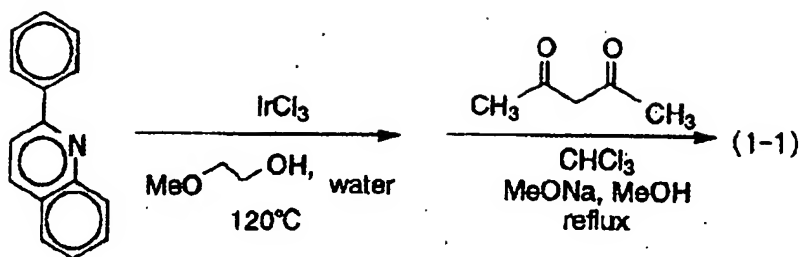
（合成例1）

（1-1）の合成

【0054】

【化17】

19
(1-1)の合成



【0055】2-フェニルキノリン 1g、イリジウムクロライド (III) 0.71g、2-メトキシエタノール40ml、水10mlを混合し、窒素気流下、120℃で6時間攪拌した。室温に冷却した後、一規定塩酸水50mlを加え、析出している固体を濾別した。シリカゲルカラムクロマトグラフィー (クロロホルム) で精製し、赤褐色固体を得た。得られた赤褐色固体0.1g、アセチルアセトン0.08g、ナトリウムメトキシイドメタノール溶液 (28wt%) 0.15ml、クロ*

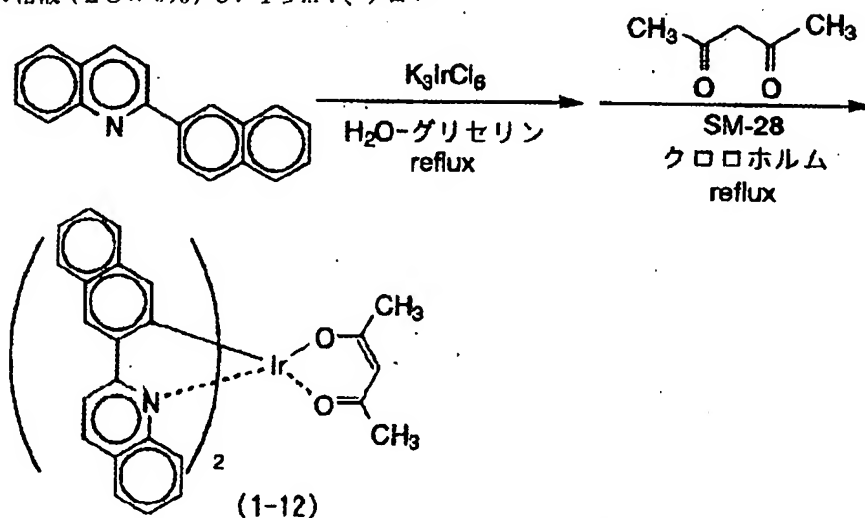
*ロホルム30mlを混合し、3時間加熱還流した。室温に冷却した後、反応溶液をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (クロロホルム) で精製し、赤色固体 (1-1) 0.08gを得た。

(合成例2)

例示化合物 (1-12) の合成

【0056】

【化18】



【0057】 K_3IrCl_6 0.65gを水12mlに溶解したものに2-(2-ナフチル)キノリン0.68gとグリセリン50ml添加し、180℃にて6時間加熱攪拌した。反応終了後、放冷し、水を添加し、析出した茶色固体を濾取、乾燥した。次に得られた固体をクロロホルム200mlに溶解したものに、アセチルアセトン2.5gと28%ナトリウムメトキシイドメタノール溶液4.8gを添加し、加熱還流下、8時間反応した。反応終了後、水300mlに注ぎ、クロロホルムで抽出した。抽出液を無水硫酸マグネシウムで乾燥後濃縮し、得られた固体をシリカゲルカラムクロマトグラフィにて展開した (クロロホルム-メタノール=20:1)。溶出した赤色フラクションを濃縮し、クロロホルム-エタノールにて再結晶、乾燥し、目的の例示化合物1-12を※

※330mg得た。本化合物の溶液蛍光スペクトルを測定したところ、蛍光の λ_{max} =658nm (CHCl₃)であった。

(合成例3)

40 例示化合物 (1-4) の合成

合成例2で用いた配位子2-(2-ナフチル)キノリンを2-(1-ナフチル)キノリンに代え、同様の方法で合成を行い、目的の例示化合物1-4を57mg得た。本化合物の溶液蛍光スペクトルを測定したところ、蛍光の λ_{max} =644nm (CHCl₃)であった。

(合成例4)

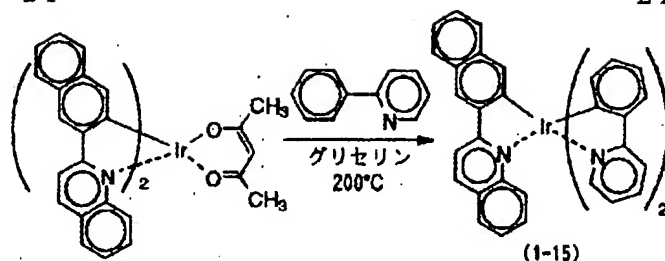
例示化合物 (1-15) の合成

【0058】

【化19】

21

22



【0059】本発明の例示化合物(1-12) 30 mg と2-フェニルピリジン60 mgをグリセリン2 ml 添加し、200℃にて3時間加熱攪拌した。反応終了後、放冷し、水を添加し、クロロホルムで抽出した。抽出液を無水硫酸マグネシウムで乾燥後濃縮し、得られた固体をクロロホルムをもちいしシリカゲルカラムクロマトグラフィにて展開した。溶出した橙色フラクションを濃縮し、クロロホルム-エタノールにて再結晶、乾燥し、目的の例示化合物1-15を10 mg得た。本化合物の溶液蛍光スペクトルを測定したところ、蛍光の λ_{\max} = 646 nm (CHCl₃)であった。

【0060】次に、本発明の化合物を含有する発光素子に関して説明する。本発明の発光素子は、本発明の化合物を利用する素子であればシステム、駆動方法、利用形態など特に問わないが、本発明の化合物からの発光を利用するもの、または本化合物を電荷輸送材料として利用する物が好ましい。代表的な発光素子として有機EL (エレクトロルミネッセンス) 素子を挙げることができる。

【0061】本発明の化合物を含有する発光素子の有機層の形成方法は、特に限定されるものではないが、抵抗加熱蒸着、電子ビーム、スパッタリング、分子積層法、コーティング法、インクジェット法、印刷法などの方法が用いられ、特性面、製造面で抵抗加熱蒸着、コーティング法が好ましい。

【0062】本発明の発光素子は陽極、陰極の一対の電極間に発光層もしくは発光層を含む複数の有機化合物薄膜を形成した素子であり、発光層のほか正孔注入層、正孔輸送層、電子注入層、電子輸送層、保護層などを有してもよく、またこれらの各層はそれぞれ他の機能を備えたものであってもよい。各層の形成にはそれぞれ種々の材料を用いることができる。

【0063】陽極は正孔注入層、正孔輸送層、発光層などに正孔を供給するものであり、金属、合金、金属酸化物、電気伝導性化合物、またはこれらの混合物などを用いることができ、好ましくは仕事関数が4 eV以上の材料である。具体例としては酸化スズ、酸化亜鉛、酸化インジウム、酸化インジウムスズ(ITO)等の導電性金属酸化物、あるいは金、銀、クロム、ニッケル等の金属、さらにこれらの金属と導電性金属酸化物との混合物または積層物、ヨウ化銅、硫化銅などの無機導電性物質、ポリアニリン、ポリチオフェン、ポリピロールなど*

の有機導電性材料、およびこれらとITOとの積層物などが挙げられ、好ましくは、導電性金属酸化物であり、特に、生産性、高導電性、透明性等の点からITOが好ましい。陽極の膜厚は材料により適宜選択可能であるが、通常10 nm~5 μ mの範囲のものが好ましく、より好ましくは50 nm~1 μ mであり、更に好ましくは100 nm~500 nmである。

【0064】陽極は通常、ソーダライムガラス、無アルカリガラス、透明樹脂基板などの上に層形成したものが用いられる。ガラスを用いる場合、その材質については、ガラスからの溶出イオンを少なくするため、無アルカリガラスを用いることが好ましい。また、ソーダライムガラスを用いる場合、シリカなどのバリアコートを施したものを使用することが好ましい。基板の厚みは、機械的強度を保つのに十分であれば特に制限はないが、ガラスを用いる場合には、通常0.2 mm以上、好ましくは0.7 mm以上のものを用いる。陽極の作製には材料によって種々の方法が用いられるが、例えばITOの場合、電子ビーム法、スパッタリング法、抵抗加熱蒸着法、化学反応法(ゾルゲル法など)、酸化インジウムスズの分散物の塗布などの方法で膜形成される。陽極は洗浄その他の処理により、素子の駆動電圧を下げたり、発光効率を高めることも可能である。例えばITOの場合、UV-オゾン処理、プラズマ処理などが効果的である。

【0065】陰極は電子注入層、電子輸送層、発光層などに電子を供給するものであり、電子注入層、電子輸送層、発光層などの負極と隣接する層との密着性やイオン化ポテンシャル、安定性等を考慮して選ばれる。陰極の材料としては金属、合金、金属ハロゲン化物、金属酸化物、電気伝導性化合物、またはこれらの混合物を用いることができ、具体例としてはアルカリ金属(例えばLi、Na、K等)及びそのフッ化物、アルカリ土類金属(例えばMg、Ca等)及びそのフッ化物、金、銀、鉛、アルミニウム、ナトリウム-カリウム合金またはそれらの混合金属、リチウム-アルミニウム合金またはそれらの混合金属、マグネシウム-銀合金またはそれらの混合金属、インジウム、イッテリビウム等の希土類金属等が挙げられ、好ましくは仕事関数が4 eV以下の材料であり、より好ましくはアルミニウム、リチウム-アルミニウム合金またはそれらの混合金属、マグネシウム-銀合金またはそれらの混合金属等である。陰極は、上記

化合物及び混合物の単層構造だけでなく、上記化合物及び混合物を含む積層構造を取ることもできる。例えば、アルミニウム/フッ化リチウム、アルミニウム/酸化リチウムの積層構造が好ましい。陰極の膜厚は材料により適宜選択可能であるが、通常10nm~5μmの範囲のものが好ましく、より好ましくは50nm~1μmであり、更に好ましくは100nm~1μmである。陰極の作製には電子ビーム法、スパッタリング法、抵抗加熱蒸着法、コーティング法などの方法が用いられ、金属を単体で蒸着することも、二成分以上を同時に蒸着することもできる。さらに、複数の金属を同時に蒸着して合金電極を形成することも可能であり、またあらかじめ調整した合金を蒸着させてもよい。陽極及び陰極のシート抵抗は低い方が好ましく、数百Ω/□以下が好ましい。

【0066】発光層の材料は、電界印加時に陽極または正孔注入層、正孔輸送層から正孔を注入することができると共に陰極または電子注入層、電子輸送層から電子を注入することができる機能や、注入された電荷を移動させる機能、正孔と電子の再結合の場を提供して発光させる機能を有する層を形成することができるものであれば何でもよく一重項励起子または三重項励起子のいずれから発光するものであってもよい。例えばベンゾオキサゾール誘導体、ベンゾイミダゾール誘導体、ベンゾチアゾール誘導体、スチリルベンゼン誘導体、ポリフェニル誘導体、ジフェニルブタジエン誘導体、テトラフェニルブタジエン誘導体、ナフタリイミド誘導体、クマリン誘導体、ペリレン誘導体、ペリノン誘導体、オキサジアゾール誘導体、アルダジン誘導体、ピラリジン誘導体、シクロペンタジエン誘導体、ビススチリルアントラセン誘導体、キナクリドン誘導体、ピロロピリジン誘導体、チアジアゾロピリジン誘導体、シクロペンタジエン誘導体、スチリルアミン誘導体、芳香族ジメチリデン化合物、8-キノリノール誘導体の金属錯体や希土類錯体に代表される各種金属錯体等、ポリチオフェン、ポリフェニレン、ポリフェニレンビニレン等のポリマー化合物、有機シラン誘導体、本発明の化合物等が挙げられる。発光層の膜厚は特に限定されるものではないが、通常1nm~5μmの範囲のものが好ましく、より好ましくは5nm~1μmであり、更に好ましくは10nm~500nmである。発光層の形成方法は、特に限定されるものではないが、抵抗加熱蒸着、電子ビーム、スパッタリング、分子積層法、コーティング法（スピンコート法、キャスト法、ディップコート法など）、インクジェット法、印刷法、LB法などの方法が用いられ、好ましくは抵抗加熱蒸着、コーティング法である。

【0067】正孔注入層、正孔輸送層の材料は、陽極から正孔を注入する機能、正孔を輸送する機能、陰極から注入された電子を障壁する機能のいずれか有しているものであればよい。その具体例としては、カルバゾール誘導体、トリアゾール誘導体、オキサゾール誘導体、オキ

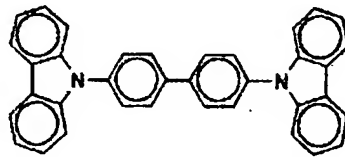
サジアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、ポリアリーアルカン誘導体、ピラゾリン誘導体、ピラゾロン誘導体、フェニレンジアミン誘導体、アリールアミン誘導体、アミノ置換カルコン誘導体、スチリルアントラセン誘導体、フルオレノン誘導体、ヒドラゾン誘導体、スチルベン誘導体、シラザン誘導体、芳香族第三級アミン化合物、スチリルアミン化合物、芳香族ジメチリデン系化合物、ボルフィリン系化合物、ポリシラン系化合物、ポリ(N-ビニルカルバゾール)誘導体、アニリン系共重合体、チオフェンオリゴマー、ポリチオフェン等の導電性高分子オリゴマー、有機シラン誘導体、カーボン膜、本発明の化合物等が挙げられる。正孔注入層、正孔輸送層の膜厚は特に限定されるものではないが、通常1nm~5μmの範囲のものが好ましく、より好ましくは5nm~1μmであり、更に好ましくは10nm~500nmである。正孔注入層、正孔輸送層は上述した材料の1種または2種以上からなる単層構造であってもよいし、同一組成または異種組成の複数層からなる多層構造であってもよい。正孔注入層、正孔輸送層の形成方法としては、真空蒸着法やLB法、前記正孔注入輸送剤を溶媒に溶解または分散させてコーティングする方法（スピンコート法、キャスト法、ディップコート法など）、インクジェット法、印刷法が用いられる。コーティング法の場合、樹脂成分と共に溶解または分散することができ、樹脂成分としては例えば、ポリ塩化ビニル、ポリカーボネート、ポリスチレン、ポリメチルメタクリレート、ポリブチルメタクリレート、ポリエステル、ポリスルホン、ポリフェニレンオキシド、ポリブタジエン、ポリ(N-ビニルカルバゾール)、炭化水素樹脂、ケトン樹脂、フェノキシ樹脂、ポリアミド、エチルセルロース、酢酸ビニル、ABS樹脂、ポリウレタン、メラミン樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、アルキド樹脂、エポキシ樹脂、シリコン樹脂などが挙げられる。

【0068】電子注入層、電子輸送層の材料は、陰極から電子を注入する機能、電子を輸送する機能、陽極から注入された正孔を障壁する機能のいずれか有しているものであればよい。その具体例としては、トリアゾール誘導体、オキサゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、フルオレノン誘導体、アントラキノジメタン誘導体、アントロン誘導体、ジフェニルキノリン誘導体、チオピランジオキシド誘導体、カルボジイミド誘導体、フルオレニリデンメタン誘導体、ジスチリルピラジン誘導体、ナフタレンペリレン等の複素環テトラカルボン酸無水物、フタロシアニン誘導体、8-キノリノール誘導体の金属錯体やメタルフタロシアニン、ベンゾオキサゾールやベンゾチアゾールを配位子とする金属錯体に代表される各種金属錯体、有機シラン誘導体、本発明の化合物等が挙げられる。電子注入層、電子輸送層の膜厚は特に限定されるものではないが、通常1nm~5μmの範囲のものが好ましく、より好ましくは5nm~1μmであり、更に

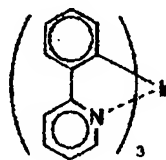
好ましくは10nm～500nmである。電子注入層、電子輸送層は上述した材料の1種または2種以上からなる単層構造であってもよいし、同一組成または異種組成の複数層からなる多層構造であってもよい。電子注入層、電子輸送層の形成方法としては、真空蒸着法やLB法、前記電子注入輸送剤を溶媒に溶解または分散させてコーティングする方法（スピンコート法、キャスト法、ディップコート法など）、インクジェット法、印刷法などが用いられる。コーティング法の場合、樹脂成分と共に溶解または分散することができ、樹脂成分としては例

【0069】保護層の材料としては水分や酸素等の素子劣化を促進するものが素子内に入ることを抑止する機能を有しているものであればよい。その具体例としては、In、Sn、Pb、Au、Cu、Ag、Al、Ti、Ni等の金属、MgO、SiO、SiO₂、Al₂O₃、GeO、NiO、CaO、BaO、Fe₂O₃、Y₂O₃、TiO₂等の金属酸化物、MgF₂、LiF、AlF₃、CaF₂等の金属フッ化物、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリメチルメタクリレート、ポリイミド、ポリウレ

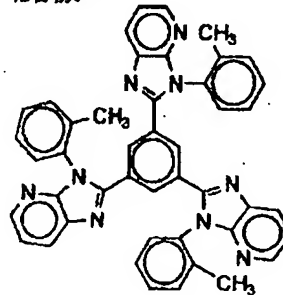
化合物A



化合物B



化合物C



【0073】比較例2

洗浄したITO基板を蒸着装置に入れ、 α -NPD (N, N'-ジフェニル-N, N'-ジ(α -ナフチル)-ベンジジン) を40nm蒸着し、この上にAlq※50

※成方法についても特に限定はなく、例えば真空蒸着法、スパッタリング法、反応性スパッタリング法、MBE (分子線エピタキシ) 法、クラスターイオンビーム法、イオンプレーティング法、プラズマ重合法 (高周波励起イオンプレーティング法)、プラズマCVD法、レーザーCVD法、熱CVD法、ガスソースCVD法、コーティング法、印刷法を適用できる。

【0070】

【実施例】以下に本発明の具体的実施例を述べるが、本発明の実施の態様はこれらに限定されない。

【0071】比較例1

洗浄したITO基板を蒸着装置に入れ、 α -NPD (N, N'-ジフェニル-N, N'-ジ(α -ナフチル)-ベンジジン) を40nm蒸着し、この上に化合物A、化合物Bを(10:1)の比率で24nm共蒸着し、この上に、化合物Cを24nm蒸着した。有機薄膜上にパターンニングしたマスク (発光面積が4mm×5mmとなるマスク) を設置し、蒸着装置内でマグネシウム:銀=10:1を250nm共蒸着した後、銀250nmを蒸着した。東陽テクニカ製ソースメジャーユニット2400型を用いて、直流定電圧をEL素子に印加し発光させ、その輝度をトプコン社の輝度計BM-8、発光波長を浜松フォトニクス社製スペクトルアナライザーPMA-11を用いて測定した。その結果、発光の λ_{max} =516nm、CIE色度値(x, y)=(0.29, 0.62)の緑色発光が得られ、外部量子効率13.6%(478cd/m²時)であった。

【0072】

【化20】

※ (トリスキノリナトアルミニウム), DCM (4-(dimethylaminomethylene)-2-methyl-6-(4-dimethylaminostyryl)-4H-pyran) を(100:1)の比率で

60 nm 共蒸着し、比較例1と同様に陰極蒸着し素子作製した。その結果、発光の $\lambda_{\max}=597\text{ nm}$ 、CIE色度値 $(x, y)=(0.54, 0.44)$ の赤橙色発光が得られ、外部量子効率0.89%(248 cd/m²時)であった。発光スペクトルの半値幅は92 nmであった。

【0074】実施例1

比較例1の化合物Bの替わりに(1-1)を用い、比較例1と同様に素子作製した。発光の $\lambda_{\max}=599\text{ nm}$ CIE色度値 $(x, y)=(0.60, 0.39)$ の赤色の発光が得られ、外部量子効率13.4%(252 cd/m²時)であった。発光スペクトルの半値幅は69 nmであった。

【0075】実施例2

比較例1の化合物Bの替わりに(1-12)を用い、比較例1と同様に素子作製した。発光の $\lambda_{\max}=623\text{ nm}$ CIE色度値 $(x, y)=(0.65, 0.34)$ の赤色の発光が得られ、外部量子効率10.9%(379 cd/m²時)であった。発光スペクトルの半値幅は75 nmであった。

実施例3

ポリ(N-ビニルカルバゾール)40 mg、PBD(2-(4-ビフェニル)-5-(4-tert-ブチルフェニル)-1,3,4-オキサジアゾール)12 mg、本発明化合物(1-1)1 mgをジクロロエタン2.5 mlに溶解し、洗浄した基板上にスピコートした(1500 rpm, 20 sec)。有機層の膜厚は120 nmであった。有機薄膜上にバターンニングしたマスク(発光面積が4 mm×5 mmとなるマスク)を設置し、蒸着装置内でマグネシウム：銀=10：1を250 nm共蒸着した後、銀250 nmを蒸着した。直流定電圧をEL素子に印加し発光させ、輝度、発光スペクトル、電圧-電流特性を測定した。その結果、発光の $\lambda_{\max}=603\text{ nm}$ の色度 $(x, y)=(0.61, 0.38)$ の橙色発光が得られた。50 cd/m²付近での外部量子収率を算出したところ5.0%であった。

【0076】実施例4

実施例3の化合物(1-1)の替わりに(1-4)を用い、実施例3と同様に素子作製した。その結果、発光の $\lambda_{\max}=641\text{ nm}$ の色度 $(x, y)=(0.68, 0.30)$ の赤色発光が得られた。50 cd/m²付近での外部量子収率を算出したところ5.2%であった。

実施例5

ポリ(N-ビニルカルバゾール)40 mg、PBD(2-(4-ビフェニル)-5-(4-tert-ブチルフェニル)-1,3,4-オキサジアゾール)12 mg、本発明化合物(1-12)1 mgをジクロロエタン2.5 mlに溶解し、洗浄した基板上にスピコートした(1500 rpm, 20 sec)。有機層の膜厚は110 nmであった。それを蒸着装置に入れ、有機膜上に、化合物Cを

40 nm蒸着した。有機薄膜上にバターンニングしたマスク(発光面積が4 mm×5 mmとなるマスク)を設置し、蒸着装置内でフッ化リチウムを5 nm蒸着した後、アルミニウムを500 nmを蒸着した。直流定電圧をEL素子に印加し発光させた結果、発光の $\lambda_{\max}=633\text{ nm}$ の赤色発光が得られ、外部量子効率6.2%(100 cd/m²時)であった。

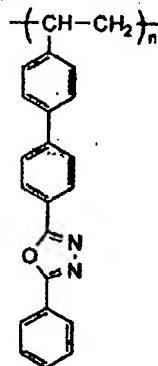
【0077】実施例6

ポリ(N-ビニルカルバゾール)40 mg、化合物Dを12 mg、本発明化合物(1-12)1 mgをジクロロエタン2.5 mlに溶解し、洗浄した基板上にスピコートした(3000 rpm, 20 sec)。それを真空加熱乾燥(100℃, 1時間)し、その上に化合物Cをn-ブタノール2.5 mlに溶解しスピコートした。有機層の膜厚は130 nmであった。得られた有機薄膜上にバターンニングしたマスク(発光面積が4 mm×5 mmとなるマスク)を設置し、蒸着装置内でフッ化リチウムを5 nm蒸着した後、アルミニウムを500 nmを蒸着した。直流定電圧をEL素子に印加し発光させた結果、発光の $\lambda_{\max}=635\text{ nm}$ の赤色発光が得られ、外部量子効率6.8%(2000 cd/m²時)であった。

【0078】

【化21】

化合物D



重量平均分子量
20,000
(ポリスチレン換算)

【0079】同様に、本発明の化合物を含有するEL素子を作製・評価することにより、高効率赤色発光EL素子が作製できる。

【0080】

【発明の効果】本発明の高効率赤色発光素子は従来の赤色発光素子に比べて高い効率を有しており、表示素子、ディスプレイ、バックライト、電子写真、照明光源、記録光源、露光光源、読み取り光源、標識、看板、インテリア等の分野に好適である。従来の外部量子収率5%に満たない赤色発光有機EL素子に比べて消費電力を大幅に下げることが出来、大面積化、長時間使用が可能など有機ELカラーディスプレイの適用範囲を大きく広げることができる。また、本発明の化合物は、医療用途、蛍光増白剤、写真用材料、UV吸収材料、レーザー色素、

カラーフィルター用染料、色変換フィルター等にも適用

可能である。

フロントページの続き

(51)Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	タームコード(参考)
C 07 D 409/04		C 07 D 409/04	
C 07 F 15/00		C 07 F 15/00	E
C 09 K 11/06	660	C 09 K 11/06	660

Fターム(参考) 3K007 AB03 CA01 CB01 DA02 DB03
 FA01
 4C056 AA01 AB01 AC02 AD03 AE03
 CA03 CC01 CD01
 4C063 AA01 BB01 CC14 CC92 DD12
 DD14 EE10
 4H050 AA01 AB92 WB11 WB13 WB14
 WB21